

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **04230954 A**(43) Date of publication of application: **19.08.92**

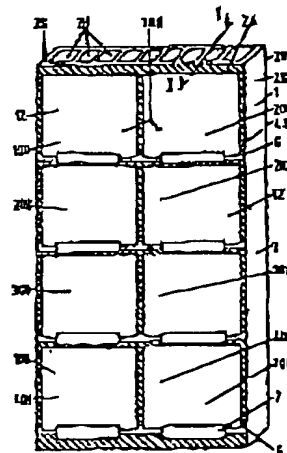
(51) Int. Cl.

H01M 8/02**H01M 8/12****H01M 8/24**(21) Application number **03085786**(22) Date of filing: **27.03.91**(30) Priority: **10.04.90 DE 90 4011506**(71) Applicant: **ABB PATENT GMBH**(72) Inventor: **ROHR FRANZ J****(54) FUEL CELL DEVICE AND ITS MANUFACTURE****(57) Abstract:**

PURPOSE: To establish a method and device for manufacturing a fuel cell equipped with an improved power density.

CONSTITUTION: A fuel device 1 has a support 2 as a core, and the support has an open cavity 2H penetrating, and on its surfaces 2A and 2B, a number of fuel cells 1Z are installed which are connected in series or parallel to one another through electroconductive track 4. The support 2 is manufactured by an extrusion process. The track 4 and an insulative layer 6 are supplied to the surfaces 2A and 2B by screen printing and coupled with the support 2 permanently by means of sintering. Each fuel cell 1Z formed from layers 10, 11, 12 is manufactured by the sheet formation and screen printing and coupled with the support 2 permanently by the bonding and sintering process.

COPYRIGHT (C)1992,JPO



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-230954

(43) 公開日 平成4年(1992)8月19日

(51) Int. Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M	8/02	E 9062-4K		
	8/12	9062-4K		
	8/24	Z 9062-4K		

審査請求 未請求 請求項の数10(全 5 頁)

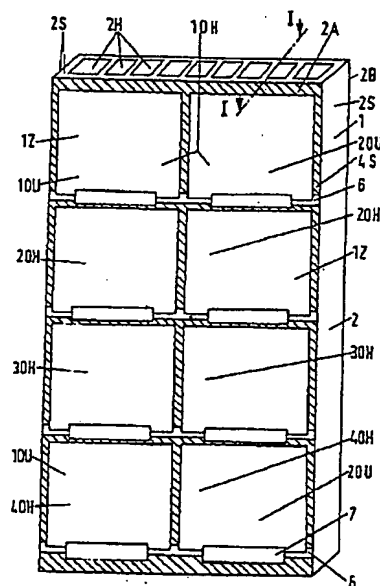
(21) 出願番号	特願平3-85786	(71) 出願人	591079203 アーベー・パテント・ゲーエムベーハー ABB PATENT GESELLSCHAFT MIT BESCHRANKTER HAFTUNG ドイツ連邦共和国、デー - 6800 マンハイム、カルスタツタ・シユトラーセ 1
(22) 出願日	平成3年(1991)3月27日	(72) 発明者	フランツ・ヨーゼフ・ロール ドイツ連邦共和国、デー - 6941 アプトシユタイナハ、フオルストベーク 2
(31) 優先権主張番号	P 4 0 1 1 5 0 6 2	(74) 代理人	弁理士 鈴江 武彦
(32) 優先日	1990年4月10日		
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)		

(54) 【発明の名称】 燃料セル装置及びその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 改良されたパワー密度を有する燃料セル装置及びその製造方法を提供する。

【構成】 燃料セル装置 (1) はコアとしてサポート (2) を有し、上記サポートは貫通する開口キャビティ (2 H) を有し、その表面 (2 A 及び 2 B) 上に、導電トラック (4) を介して互いに直列及び並列に相互接続された多数の燃料セル (1 Z) が配置される。サポート (2) は押出し工程により製造される。導電トラック (4) 及び絶縁層 (6) がスクリーン印刷により上記表面 (2 A 及び 2 B) に供給され、焼結によりサポート (2) に永久結合される。個々の層 (1 0、1 1、1 2) から構築された燃料セル (1 Z) がシート成形及びスクリーン印刷工程により製造され、接着焼結によりサポート (2) に永久結合される。



1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 空気若しくは酸素を通過させる為の貫通する外側開口キャビティ（2H）を有し、またその表面（2A及び2B）上に少なくとも1つの燃料セル（1Z）を夫々有する、多孔性パネル型サポート（2）を具備する燃料セル装置であって、互いに垂直方向に上下に配置され、且つ、ネットワーク（5）の導電トラックを介して互いに電気的に相互接続された燃料セル（1Z）を含む少なくとも2つの列（10H、20H、30H、40H）が上記サポート（2）の2つの表面（2A、2B）上に配置されることを特徴とする燃料セル装置。

【請求項2】 各水平列（10H、20H、30H、40H）の上記燃料セル（1Z）が互いに並列に相互接続され、垂直列（10U、20U）の燃料セルが互いに直列に相互接続される請求項1記載の装置。

【請求項3】 各燃料セル（1Z）のカソード（12）が、夫々導電トラック（4）を介して隣接する燃料セル（1Z）のカソード（12）と並列に電気的に相互接続される請求項1または2記載の装置。

【請求項4】 各燃料セル（1Z）が、アノード（10）として機能する層、固体電解質（11）として機能する層、及びカソード（12）として機能する層を積重することにより形成され、また、全ての燃料セル（1Z）のアノード（10）が外向きに配置され、並列及び／または直列相互接続の為、夫々導電層7を介して、直ぐに隣接する燃料セル（1Z）に対して接続される請求項1乃至3のいずれかに記載の装置。

【請求項5】 上記サポート（2）の上記キャビティ（2H）の長手方向軸が、上記サポート（2）の2つの表面（2A及び2B）に対して、且つ互いに平行に延在し、各2つの隣接キャビティ（2H）の長手方向軸間の距離が1-2cmで、また、上記全キャビティが上記サポート（2）の全長に亘って延在する請求項1乃至4のいずれかに記載の装置。

【請求項6】 上記サポート（2）が、1000℃で10乃至11×10⁻⁶/度の熱膨脹係数を有する耐蝕性且つ多孔性セラミック材料から製造され、上記サポート（2）の有孔率が、上記材料の理論密度に基づいて、30乃至45%で、また、上記サポート（2）が、15モル%のカルシウム酸化物及び／またはマグネシウム酸化物の添加により安定化される、マグネシウム-アルミニウムスピネル若しくはジルコニウム酸化物から製造される請求項1乃至5のいずれかに記載の装置。

【請求項7】 上記サポート（2）が押出し工程で製造され、導電トラック（4）のネットワーク（5）が、その表面（2A及び2B）に、上記燃料セル（1Z）の直列及び並列相互接続の為に形成される請求項1乃至6のいずれかに記載の装置。

【請求項8】 各カソード（12）が、0.2乃至1mmの厚さを有する、ストロンチウムのドーブされたラン

(2)

特開平4-230954

2

ン亜マンガン酸塩（La_{1-x}Sr_xMnO₃）から製造され、固体電解質として機能する各層（11）が、イットリウムのドーブされたジルコニウム酸化物から製造され且つ0.05-0.25μmの厚さを有し、またアノードとして機能する層（10）が、ニッケル及びイットリウムのドーブされた二酸化ジルコニウムの態様のサーメットから製造され且つ50乃至200μmの厚さをなし、更にまた、上記ネットワーク（5）の導電トラック（4）が、ストロンチウムのドーブされたランタン亜クロム酸塩の態様のペロブスカイト混合酸化物、或いはマグネシウム若しくはカルシウムのドーブされたランタン亜クロム酸塩、及びニッケル酸化物若しくはニッケル酸化物／ジルコニウム酸化物の追加の層から製造され、また、上記絶縁層（6）が焼結されたガラスセラミック若しくはスピネルから製造される請求項1乃至7のいずれかに記載の装置。

【請求項9】 特に請求項1記載の燃料セル装置を製造する方法であって、アノード（10）、固体電解質（11）、及びカソード（12）として機能する層が、シート成形及び／またはスクリーン印刷工程を利用して製造され、また、夫々1つがアノードとして、1つが固体電解質、及び1つがカソードとして機能する層（10、11、12）が積重状に配置され、永久結合の為に1350乃至1450℃で焼結される製造方法。

【請求項10】 燃料セル装置を製造する方法であって、サポート（2）が押出し工程で製造され、絶縁層（6）及びネットワーク（5）を形成する導電トラック（4）が、その2つの表面（2A及び2B）に対してスクリーン印刷工程により供給され、上記サポート（2）が、供給された層（6）及び導電トラック（4）と一緒に、1400乃至1550℃で焼結され、また、燃料セル（1Z）に対する永久結合の為に、上記サポート（2）が、その表面（2A及び2B）上の、絶縁層（3）及び導電トラック（4）のない領域（8）において、スクリーン印刷工程により、夫々ストロンチウムのドーブされたランタン亜マンガン酸塩La（Sr）MnO₃若しくはLa（Ca）CrMnO₃の態様の導電性ペロブスカイト混合酸化物の1層（9）で被覆され、また、上記燃料セル（1Z）が上記領域（8）内に配置され、永久結合の為に1300乃至1450℃で上記サポート（2）と一緒に焼結される製造方法。

【発明の詳細な説明】本発明は、特許請求の範囲第1項の前段に従い、少なくとも1つの燃料セルが配置されるサポートを有する燃料セル装置、及び上記燃料セル装置の製造方法に関する。

【0001】上記燃料セル装置は、例えば電流源として使用可能である。F.J. Rohr による（「High Temperature Fuel Cells, Solid Electrolytes」, Academic Press, N.Y., 1978）という名称の情報文献には、酸素イオンを伝達する電解質並びにアノード及びカソードを含有

(3)

特開平4-230954

3

するセラミック燃料セルが開示される。この装置は、例えばガス化石炭、天然ガス若しくは水素のような燃料セルの化学的エネルギーを、800℃を超える温度における酸素による電気化学的な酸化により、電気エネルギーに直接転換することを可能とする。上記エネルギーは50%を超える効率で転換される。燃料セル装置は、幾つかの燃料セルを組合わせ、これらを直列に接続することにより形成されることが知られている。これらの装置は、望ましくないシーリング及び接続技術の結果、高温運転温度において、高いパワー損失を有する為、連続運転にあまり適当でない。

【0002】この従来技術から出発して、本発明の目的は、改良されたパワー密度を有する燃料セル装置及び上記装置を製造する方法を提供することである。

【0003】上記目的は、特許請求の範囲第1項に記載の発明によって達成される。

【0004】上記燃料セル装置を製造する方法は特許請求の範囲第9項に記載される。

【0005】上記燃料セル装置は別々に作製された構成成分から組立て可能となる。上記燃料セル装置の上記構造は、燃料セルの並列及び直列相互接続の為のネットワークを形成する導電トラック、及び上記燃料セルの製造から独立した、必要な絶縁層と一緒にサポートを製造することを可能とする。別の工程において、上記プレート型燃料セルはシート成形及びスクリーン印刷により個々の層から構築され、これらが製造された後で上記サポートと組合わせ可能となる。本発明に重要な他の特徴は特許請求の従属項において特徴付けられる。

【0006】以下、本発明は線図に基づいてより詳細に説明される。

【0007】図1は、燃料セル12及びサポート2により実質的に形成される燃料セル装置1を示す。サポート2はプレート型構造で多孔性材料から製造される。サポート2の内部は、これを貫通するキャビティー2Hを有し、これらは互いにある間隔を置いて配置され、また、これらの長手方向軸は互いに且つサポート2の2つの表面2A及び2Bに対して並行に延在する。キャビティー2Hはサポート2の両端部で外側に開口し、空気若しくは酸素が通過できるようになっている。

【0008】図1図示のサポート2は、20-50cmの長さ及び10-30cmの幅をなす。その厚さは0.8-1.8cmである。キャビティー2Hは0.5×1乃至1.2×2.4cm²の断面を有する。2つのキャビティー2H間の距離は0.1-0.2cmである。

【0009】サポート2は押出し工程により製造される。その製造に使用される材料は、カルシウム酸化物若しくはマグネシウム酸化物で安定化されるジルコニウム酸化物からなる。カルシウム酸化物若しくはマグネシウム酸化物の比率は、使用されるセラミック材料の総モル重量に基づいて約15モル%である。安定化されたジル

4

コニウム酸化物に代え、マグネシウムアルミニウムスピネル(MgAl₂O₄)がまた使用可能となる。他の耐温度及び耐蝕セラミック材料が使用可能であり、但し、上述の材料の場合と同様に、1000℃におけるそれらの熱膨張係数がまた、10乃至11×10⁻⁶/度の近辺にあるとする。

【0010】サポート2は、セラミック材料の理論密度に基づいて、30乃至45%の有孔率を有する。この有孔率を達成する為、増孔剤が上記押出し化合物に添加される。この目的において、ポリアルコール若しくはカーボネートの懸濁の発泡剤が適当である。上記増孔剤はセラミックの焼結中に熱的に分解し、孔を形成する。

【0011】図2を参照すると明らかなように、サポート2はその表面2A上にネットワーク5を形成する導電トラック4を有する。導電トラック4は櫛状構造をなし、互いにある間隔を置いて配置される。導電トラック4の全ての水平導電セクション4Hは、サポート2の全幅に亘って延在する。各水平セクション4Hに対して垂直に配置された導電セクション4Sは、互いにある間隔を置いて配置される。

【0012】上記間隔は、図示の実施例において2-5cmである。水平導電トラックセクション4Hの幅は3-6mmで、垂直導電トラックセクション4Sの幅は2-4mmである。

【0013】導電トラック4は、例えば、ストロンチウムがドーブされたランタン亜クロム酸塩、或いはマグネシウム若しくはカルシウムがドーブされたランタン亜クロム酸塩のような、ペロブスカイト混合酸化物の態様の、気密な導電性材料から製造される。導電性を増大させる為、上記導電トラック4は、ニッケル酸化物/ジルコニウム酸化物若しくはニッケル酸化物の0.1-0.2mmの厚さの層で更に被覆され、これらは次続の燃料セル運転中に金属ニッケルに還元される。

【0014】互いに重ねられた櫛状導電トラックを分離する絶縁層6は、焼結ガラスセラミック若しくはスピネルから製造される。上記材料はまた気密である。サポート2は上述の材料を使用して押出し工程により製造される。導電トラック4及び絶縁層6は、スクリーン印刷工程によりサポート2の表面2A及び2Bに供給される。サポート2は、導電トラック4及び絶縁層6と共に、続いて1400乃至1550℃の温度で焼結される。その結果、導電トラック4、絶縁層6及びサポート2間に、永久結合が達成される。

【0015】図3図示の如く、全ての燃料セル12は3つの層10、11及び12から構築される。アノードとして機能する層10はニッケル/ジルコニウムの二酸化物のサーメットから形成される。これは多孔質で約50乃至200μmの厚さをなす。固体電解質として機能する層11は、気密材料から製造される。これは50乃至200μmの厚さを有する。(ZrO₂)_{0.9}(Y₂O₃)_{0.1}。

特開平4-230954

るサーメットから製造される。

【0018】水平列10H、20H、30H、40Hに属する燃料セルZは、導電トラック4を介して互いに並列に相互接続され、列10U、20Uに属する燃料セル1Zは、導電層7を介して直列に接続される。

【 0 0 1 9 】 サポート 2 に対する燃料セル 1 Z の永久的結合は焼結によって達成される。この為、図 2 図示の如く、導電トラック 4 と絶縁層 6 との間の領域は、導電性ペロブスカイト混合酸化物物から製造される多孔層 9 で被覆される。層 9 は、スクリーン印刷によりサポート 2 の表面 2 A 及び 2 B に供給される。次に、図 1 及び 4 図示の如く、燃料セル 1 Z が、サポートの表面 2 A 及び 2 B 上に配置され、1 3 0 0 乃至 1 4 5 0 ° C の温度での焼結により、サポート 2 に対して永久的に結合される。キャビティー 2 H を通過する空気若しくは酸素が、サポート 2 を通り、カソード 1 2 の領域のみにおいて燃料セル 1 Z に対して移動し、且つ、他の点でサポートから逃げられないように、気密導電トラック 4 若しくは気密構造の絶縁層 6 で被覆されていないサポート 2 の領域 2 S は、焼結ガラスセラミック若しくはエナメルの上薬で被覆される。

【図1】燃料セル装置を示す図。

【図2】燃料セル装置の為のサポートを示す図。

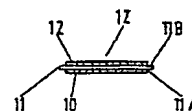
【図3】燃料セルを示す縦断面図。

【図4】図1図示装置の縦断面図。

【符号の説明】

1…燃料セル装置、2…サポート、4…導電トラック、
6…絶縁層、1Z…燃料セル、10…アノード、11…
固体電解質、12…カソード。

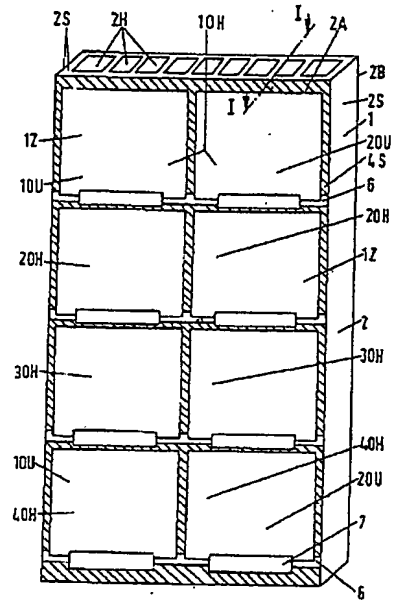
【图 3】



(5)

特開平4-230954

【図1】



【図4】

